



Prioritätsbescheinigung über die Einreichung einer Patentanmeldung

Aktenzeichen: 103 15 698.4

Anmeldetag: 07. April 2003

Anmelder/Inhaber: DaimlerChrysler AG,
70567 Stuttgart/DE

Bezeichnung: Gaserzeugungssystem mit einem Reformer und
mit einer Einrichtung zur selektiven Abtrennung
von Wasserstoff aus dem Reformatgasstrom

IPC: C 01 B 3/02

Die angehefteten Stücke sind eine richtige und genaue Wiedergabe der ursprünglichen Unterlagen dieser Patentanmeldung.

München, den 11. März 2004
Deutsches Patent- und Markenamt
Der Präsident
Im Auftrag

A handwritten signature in black ink, appearing to be 'Wallner', is written over the text 'Im Auftrag'.

Wallner

DaimlerChrysler AG

Senft

02.04.2003

Gaserzeugungssystem mit einem Reformer und mit einer
Einrichtung zur selektiven Abtrennung von Wasserstoff
aus dem Reformatgasstrom

5 Die Erfindung betrifft ein Gaserzeugungssystem mit wenigstens
einem Reformer zum Erzeugen eines wasserstoffhaltigen Refor-
matgasstroms aus Einsatzstoffen, von welchen zumindest einer
Kohlenstoff und Wasserstoff aufweist, sowie mit wenigstens
einer Einrichtung zur selektiven Abtrennung von Wasserstoff
10 aus dem wasserstoffhaltigen Reformat. Des weiteren betrifft
die Erfindung eine Verwendung für ein derartiges Gaserzeu-
gungssystem.

Brennstoffzellen, insbesondere solche für mobile Anwendungen,
15 können durch Gaserzeugungseinrichtungen z.B. mittels Refor-
mierung von Kohlenwasserstoffen oder Kohlenwasserstoffderiva-
ten, wie zum Beispiel Methanol, Benzin oder Diesel mit Was-
serstoff versorgt werden. Das in einem Reformierungsprozess
entstandene Reformatgas enthält neben Wasserstoff auch Koh-
20 lenmonoxid, Kohlendioxid und Wasserdampf. Insbesondere das
Kohlenmonoxid muss für die Anwendung in der Brennstoffzelle
entfernt werden, da dieses Gas als Katalysatorgift wirkt und
zu einer Leistungseinbuße in der Brennstoffzelle führt.

25 Für die selektive Abtrennung von Wasserstoff werden seit lan-
gem Membranen eingesetzt, die aus verschiedenen Materialien
wie zum Beispiel Keramik, Glas, Polymer oder Metall bestehen
können. Metallmembranen zeichnen sich durch eine hohe Selekt-

tivität für Wasserstoff und eine hohe Temperaturstabilität aus, haben aber vergleichsweise niedrige Permeationsraten.

Um eine gewünschte Permeationsrate zu erreichen, verwendet
5 man eine Vielzahl von Membranzellen mit jeweils einer wasserstoffselektiven Membran, bei denen die einzelnen Membranen entweder nacheinander (seriell) oder nebeneinander (parallel) vom wasserstoffhaltigen Reformatgas angeströmt werden. Die Membranzellen werden aufeinander gestapelt, um ein kompaktes
10 Wasserstoffseparationsmodul zu bilden.

Derartige Wasserstoffseparationsmodule bzw. Membranmodule sind beispielsweise durch die DE 198 60 253 C1 oder die DE 199 20 517 C1 beschrieben.

15

Zum allgemeinen Stand der Technik ist aus der DE 199 34 649 A1 ein Verfahren zur Erzeugung von Wasserstoff bekannt. Dabei wird einem Reformer ein kohlenwasserstoffhaltiges Gemisch zugeführt und der erzeugte Wasserstoff wird vorzugsweise einer
20 Brennstoffzelle zur Stromerzeugung zugeleitet. Um die Bildung von Ruß im Reformer herabzusetzen, die Ausbeute an Wasserstoff sowie den Wirkungsgrad des Gesamtsystems zu erhöhen, wird in der genannten Schrift vorgeschlagen, dass zumindest ein Teil des von dem Reformer erzeugten Gases vor und/oder
25 nach der Zuleitung in die Brennstoffzelle zum Reformer zurückgeleitet und diesem erneut zugeführt wird.

Ausgehend von den oben genannten Stand der Technik ist es die Aufgabe der Erfindung die Wasserstoffausbeute des Gaserzeugungssystems mit wenigstens einem Reformer zum Erzeugen eines
30 wasserstoffhaltigen Reformatgasstroms aus Einsatzstoffen, von welchen zumindest einer Kohlenstoff und Wasserstoff aufweist, sowie mit wenigstens einer Einrichtung zur selektiven Abtrennung von Wasserstoff aus dem wasserstoffhaltigen Reformat,
35 bei möglichst geringem Einsatz an Energie zu steigern.

Erfindungsgemäß wird diese Aufgabe dadurch gelöst, dass eine Rückführung vorgesehen ist, durch welche zumindest ein Teil des nach der Einrichtung zur selektiven Abtrennung von Wasserstoff verbleibenden Restgases in den Bereich vor die Einrichtung zur selektiven Abtrennung von Wasserstoff zurückgeführt ist.

Gemäß der Erfindung wird ein Teil des Restgases, des sogenannten Retentats, welches die neben dem Wasserstoff in dem Reformatgasstrom befindlichen Inhalte, wie Wasserdampf, Kohlenmonoxid, Reste der Einsatzstoffe sowie einem im Retentat verbleibenden Anteil an Restwasserstoff, aufweist, in den Bereich des Gaserzeugungssystems zurückgeführt. Die Inhalte des Retentats können somit nochmals der Umsetzung in dem Gaserzeugungssystem zugeführt werden, was dessen Ausbeute an Wasserstoff letztendlich erhöht.

Von besonderem Vorteil ist es, dass der mit dem Retentat zurückgeführte Wasserdampf bereits dampfförmig vorliegt, und dass somit die Energie für die Verdampfung von statt dessen benötigtem extern zugeführtem Wasser eingespart werden kann.

Ein weiterer Vorteil der Rückführung ist darin zu sehen, dass in dem Retentat verbleibender Wasserstoff zumindest teilweise wieder dem Gaserzeugungssystem zugeführt wird und nicht, wie es bei Systemen gemäß dem Stand der Technik üblich ist, verbrannt wird. Der insgesamt vorhandene Wasserstoff wird dadurch deutlich besser ausgenutzt, so dass es letztendlich auch zu einer Steigerung des Wirkungsgrads eines derartigen Systems kommen kann.

In einer sehr vorteilhaften Ausgestaltung der erfindungsgemäßen Idee, ist es vorgesehen, dass zumindest ein Teil des Restgases unmittelbar vor die Einrichtung zur selektiven Abtrennung von Wasserstoff zurückgeführt ist.

Bei dieser erfindungsgemäßen Ausgestaltung der Rückführung spielt insbesondere der in dem Retentat enthaltene Restwasserstoff eine entscheidende Rolle. Durch die Rückführung unmittelbar vor die Einrichtung zur selektiven Abtrennung von Wasserstoff entsteht praktisch eine Art "Abtrennungsreaktor". Der zurückgeführte Restwasserstoff wird immer wieder der Abtrennung zugeführt, so dass sich der Wasserstoffgehalt des in die Einrichtung einströmenden Reformatgases steigert. Der dadurch erhöhte Wasserstoffmolenstrom bewirkt bei den üblichen Einrichtungen zur selektiven Abtrennung von Wasserstoff, beispielsweise mittels für Wasserstoff selektiv durchlässiger Membranen, eine Steigerung der Ausbeute an Wasserstoff.

Neben der hier beschriebenen Einrichtung könnten auch mehrere der Einrichtung, beispielsweise beim Einsatz von selektiven Membranen in hinsichtlich von Wasserstoffgehalt und Membranfläche kaskadierter Ausgestaltung, vorgesehen sein.

Gemäß einer sehr günstigen Weiterbildung des erfindungsgemäßen Aufbaus ist dieser so ausgestaltet, dass zumindest ein Teil des Restgases durch die Rückführung in den Bereich der in den Reformer eintretenden Einsatzstoffe zurückgeführt ist.

Im Gegensatz zu der soeben beschriebenen Ausführung gilt das Kerninteresse bei dieser Ausführung aus den später noch erläuterten Gründen des steam-to-carbon-ratios dem Wasserdampf, welcher zurückgeführt wird. Der geringe Anteil an Restwasserstoff stellt hier eher einen Vorteil dar, da es so, im Gegensatz zu der direkten Zurückführung von Reformat gemäß dem Stand der Technik, vermieden werden kann, dass die Reaktion im Reformer durch ein Verschieben des Reaktionsgleichgewichts aufgrund der deutlich höheren Wasserstoffkonzentration in den Edukten, gehemmt wird.

Aufgrund dieser reziprok genutzten Eigenschaften des zurückgeführten Teils des Retentats, bieten sich insbesondere auch die Kombination dieser beiden Ausgestaltungen, also sowohl

mit einer Rückführung eines Teils des Retentats vor den ein- oder mehrstufig ausgebildeten Reformer als auch mit einer Rückführung eines Teils des Retentats vor die Einrichtung zur selektiven Abtrennung von Wasserstoff an.

5

In einer besonders vorteilhaften Ausgestaltung des Gaserzeugungssystems gemäß der Erfindung ist es vorgesehen, dass zumindest ein Teil des Restgases durch die Rückführung in einem Bereich zwischen dem Reformer und einer Einrichtung zur An-
10 reicherung des wasserstoffhaltigen Gasstroms mit Wasserstoff, welche zwischen dem Reformer und der Einrichtung zur selektiven Abtrennung von Wasserstoff angeordnet ist, zugeführt ist.

Diese besonders vorteilhafte Ausgestaltung ermöglicht es, die
15 in dem Restgas bzw. Retentat, welches bei der selektiven Abtrennung von Wasserstoff übrigbleibt, verbleibenden Restbestandteile wiederum auf ihrem relativ hohen Temperaturniveau in eine entsprechende Einrichtung zur Anreicherung mit Wasserstoff zuzuführen. Diese Einrichtung kann beispielsweise
20 eine Shiftstufe, insbesondere eine Hochtemperaturshiftstufe, sein.

Aus den im Restgas verbleibenden Bestandteilen wird darin mittels eines an sich bekannten Shifts gemäß der Wassergas-
25 shiftreaktion zusätzlich Wasserstoff gewonnen, welcher dann wieder in der Einrichtung zur selektiven Abtrennung des Wasserstoffs zugeführt wird. Durch das höhere Angebot und die höhere Konzentration an Wasserstoff kann dieser zu größeren Teilen als ohne Rückführung abgetrennt werden.

30

Der Aufbau hat außerdem noch energetische Vorteile gegenüber einer Rückführung in den Bereich des Reformers, da hier wieder ein entsprechendes Aufheizen des zurückgeführten Gasstroms auf die im Reformer vorliegenden Temperaturen notwen-
35 dig wäre, während die Temperaturen im Bereich der Einrichtung zum Anreichern des wasserstoffhaltigen Gasstroms mit Wasserstoff und der Einrichtung zur selektiven Abtrennung des Was-

serstoffs bei weitem weniger unterschiedlich sind als die Temperaturen zwischen den Einrichtungen zur selektiven Abtrennung von Wasserstoff und dem Reformier.

- 5 Auch hier wäre es selbstverständlich wieder denkbar, eine Kombination der einzelnen oder aller beschriebenen Ausführungsformen der Retentat-Rückführung miteinander zu verwenden.
- 10 Insbesondere in den beiden zuletzt beschriebenen Ausgestaltungen des Gaserzeugungssystems gemäß der Erfindung ist das Mengenverhältnis von Wasserdampf zu Kohlenwasserstoff von zentraler Bedeutung. Mit zunehmenden Mengenverhältnis von Wasserdampf zu Kohlenwasserstoff steigt in besonders vorteil-
- 15 hafter Weise die Wasserstoffausbeute des Gaserzeugungssystems. Außerdem wirken sich entsprechend hohe Mengenverhältnisse von Wasserdampf zu Kohlenwasserstoff sehr positiv auf die Lebenszeit der Katalysatoren aus, da allgemein eine wesentliche Ursache für die Alterung von Katalysatoren in zu
- 20 niedrigen Mengenverhältnisse von Wasserdampf zu Kohlenwasserstoff gesehen wird.

- Den hauptsächlichen Einsatzstoff, neben den kohlenwasserstoffhaltigen Ausgangsstoff, bildet sowohl bei Dampfreformern
- 25 als auch autothermen Reformern die im Vergleich zu dem Ausgangsstoff große benötigte Menge an Wasserdampf. Dieses Wasser muss für den Einsatz in dem Reformier entsprechend erwärmt, verdampft und überhitzt werden, was aufgrund der vergleichsweise hohen Wärmekapazität von Wasser eine entsprechende
- 30 Heizleistung benötigt. Wird das Mengenverhältnis von Wasserdampf zu Kohlenwasserstoff nun entsprechend gesteigert, um die oben genannten Vorteile zu erzielen, so wird damit gleichzeitig die benötigte Wassermenge gesteigert. Dies wirkt sich dann wieder nachteilig, in einer extrem hohen benötigten
- 35 Heizleistung, aus.

Parallel dazu ist es bei derartigen Gaserzeugungssystemen so, dass das eingesetzte Wasser wieder zurückgewonnen wird. Dies erfolgt im allgemeinen durch eine Auskondensation des Wasserdampfs, so dass auch hier die erforderliche Kühlleistung entsprechend hoch wird. Um nun mit entsprechend geringer Heiz- und Kühlleistung eine hohe Wasserstoffausbeute und eine hohe Lebensdauer der eingesetzten Katalysatoren zu erzielen, ist es besonders sinnvoll, in einer der oben genannten Arten das Retentat wieder zurückzuführen, da dieses das Wasser üblicherweise bereits als Wasserdampf enthält, und so bei der Rückführung durch die Steigerung der Zugabe an kohlenwasserstoffhaltigen Ausgangsstoff ein entsprechend günstiges und vorteilhaftes Mengenverhältnis von Wasserdampf zu Kohlenwasserstoff eingestellt werden kann, wobei die Menge an dafür extern zugeführtem Wasser, welches verdampft und überhitzt werden müsste, minimal bis verschwindend ist.

Der Aufbau gemäß der Erfindung ermöglicht es also, durch die Rückführung mit geringen Heiz- und Kühlleistungen die entsprechenden Vorteile eines hohen Mengenverhältnisses von Wasserdampf zu Kohlenwasserstoff zu nutzen.

In einer sehr günstigen Weiterbildung sieht es das erfindungsgemäße Gaserzeugungssystem vor, dass die Rückführung eine Fördereinrichtung für das zurückgeführte Restgas aufweist.

Durch eine derartige Fördereinrichtung werden die Druckverluste in den einzelnen Komponenten kompensiert, so dass die Rückführung gemäß einer oder mehrerer der oben genannten Ausführungen einfach und ohne Einflussnahme auf die Druckbedingungen in den Komponenten selbst realisiert werden kann.

Gemäß einer vorteilhaften Weiterbildung hiervon ist es vorgesehen, dass die Fördereinrichtung als Gasstrahlpumpe ausgebildet ist, welche von dem Volumenstrom zumindest eines der Einsatzstoffe oder dem wasserstoffhaltigen Gasstrom angetrieben ist.

Durch den Einsatz einer Gasstrahlpumpe bzw. Jet-Pump für den zurückgeführten Teils des Retentats kann auf ein Fördermittel in der Art eines Verdichters oder dergleichen verzichtet werden. Der kinetische Energieinhalt des zu dem Reformer, der Einrichtung zum Anreichern des wasserstoffhaltigen Gasstroms mit Wasserstoff und/oder der Einrichtung zur selektiven Abtrennung des Wasserstoffs strömende Edukt- bzw. Reformatgasstrom reicht vielmehr aus, das zurückgeführten Retentat zu fördern.

Neben der Kompensation des Druckverlusts in dem zurückgeführten Teil des Retentats weist die Gasstrahlpumpe den entscheidenden Vorteil auf, dass diese Kompensation des Druckverlusts bauartbedingt ohne bewegliche Teile auskommt. Dadurch sind entsprechend hohe Temperaturen und/oder aggressive Stoffe in dem Retentat für die dauerhafte Funktionssicherheit des Aufbaus unbedenklich.

Eine besonders günstige Verwendung für derartige Gaserzeugungssysteme ist durch den Anspruch 10 beschrieben.

Da durch die erfindungsgemäßen Ausgestaltungen letztendlich die benötigte Energie für die Herstellung des Wasserstoffs minimiert und die Wasserstoffausbeute erhöht werden kann, bietet sich die Verwendung insbesondere für das Betreiben einer Brennstoffzelle an, und hier insbesondere für das Betreiben einer Brennstoffzelle auf der Basis von kommerziell üblichen Kohlenstoff und Wasserstoff ausweisenden Ausgangsstoffen, wie beispielsweise Benzin, Diesel oder entsprechenden Kohlenwasserstoffderivaten, wie Methanol oder dergleichen.

Diese Brennstoffzelle kann dabei wiederum in verschiedenartigen Brennstoffzellensystemen eingesetzt werden, wobei es sich aufgrund der besonders hohen Energieausbeute und des günstigen Wirkungsgrads anbietet, diese in einem Brennstoffzellensystem einzusetzen, welches in einem Luft-, Land- oder Was-

serfahrzeug eingesetzt wird, da hier Energieeffizienz und Reichweite im Verhältnis zum mitgeführten Kraftstoff eine besondere Bedeutung zukommt. Die Brennstoffzelle kann entweder Teil eines Antriebssystems oder auch Teil eines Hilfsenergieerzeugers (APU / Auxiliary Power Unit) sein, wie er in derartigen Systemen eingesetzt werden kann.

Weitere vorteilhafte Ausgestaltungen der Erfindung ergeben sich aus den restlichen Unteransprüchen und aus den anhand der Figuren nachfolgend dargestellten Ausführungsbeispielen.

Dabei zeigen:

- Fig. 1 eine erste mögliche Ausgestaltung des erfindungsgemäßen Gaserzeugungssystems;
- Fig. 2 eine zweite mögliche Ausgestaltung des erfindungsgemäßen Gaserzeugungssystems; und
- Fig. 3 eine dritte mögliche Ausgestaltung des erfindungsgemäßen Gaserzeugungssystems.

In Fig. 1 ist ein Gaserzeugungssystem 1 zu erkennen, durch welches eine Brennstoffzelle 2 mit Wasserstoff versorgt wird. In dem Gaserzeugungssystem 1 wird in an sich bekannter Weise aus geeigneten Einsatzstoffen ein wasserstoffhaltiges Gas erzeugt. In dem Ausführungsbeispiel gemäß den hier vorliegenden Figuren soll dies mittels eines Reformers 3 sowie einer optionalen Einrichtung zur Erhöhung des Wasserstoffgehalts, beispielsweise eine ein- oder mehrstufige Shifeinrichtung 4, sowie einer Einrichtung 5 zur Abtrennung von Wasserstoff aus dem wasserstoffhaltigen Reformatgasstrom erfolgen.

30

Den Reformer 3, welcher beispielsweise als Dampfreformer oder als autothermer Reformer ausgebildet sein kann, werden die geeigneten Einsatzstoffe A, B und C zugeführt. Bei diesen Einsatzstoffen kann es sich insbesondere um einen kohlenwasserstoffhaltigen Ausgangsstoff, wie beispielsweise Benzin, Diesel oder gegebenenfalls auch Methanol oder dergleichen,

35

handeln. Zusätzlich zu diesem in den Figuren mit A bezeichneten Einsatzstoff wird dem Reformer 3 Wasser bzw. Wasserdampf zugeführt, welcher in den nachfolgenden Figuren mit B gekennzeichnet ist. Neben diesen beiden Einsatzstoffen kann als
5 weiteres Edukt ein sauerstoffhaltiges Medium, wie beispielsweise Luft, welche in den Figuren mit C gekennzeichnet ist, optional zugeführt werden.

Aus diesen Einsatzstoffen bzw. Edukten wird in dem Reformer
10 in an sich bekannter Weise ein wasserstoffhaltiges Reformat erzeugt, welches dann über die bereits erwähnte optionale ein- oder mehrstufige Shifteinrichtung 4 nochmals in seiner Wasserstoffkonzentration angehoben wird. Danach gelangt das wasserstoffhaltige Reformat in die Einrichtung 5 zum Abtrennen des wasserstoffhaltigen Gases aus dem wasserstoffhaltigen
15 Reformat. Diese Einrichtung 5 kann beispielsweise als Membranmodul 5 ausgebildet sein, in welchem durch für Wasserstoff selektiv durchlässige Membranen ein großer Teil des in dem Reformatgasstrom enthaltenen Wasserstoffs abgetrennt und der
20 Brennstoffzelle 2 zugeführt wird.

Der Restgasstrom, das sogenannte Retentat, gelangt über die Leitung 6 aus dem Bereich des Membranmoduls 5 und kann in an sich bekannter Weise beispielsweise einer Verbrennung oder
25 dergleichen zugeführt werden. Bei dem hier dargestellten Gas-erzeugungssystem 1 zweigt von dieser Retentatleitung 6 zusätzlich eine Rückführleitung 7a ab, welche zumindest einen Teil des Retentats in den Bereich einer Zusammenführung 8 leitet, welche so ausgeführt ist, dass in ihrem Bereich das
30 durch die Rückführleitung 7a zurückgeführte Retentat wieder dem wasserstoffhaltigen Reformatgasstrom zugeführt wird.

Die Zusammenführung 8 kann außerdem als Gasstrahlpumpe ausgebildet sein, um den im Falle der Fig. 1 im Bereich des Membranmoduls 5 erzeugten Druckverlust auszugleichen, so dass das
35 zumindest teilweise zurückgeführte Retentat dem wasserstoff-

haltigen Reformatgasstrom zugeführt wird, welcher die Gasstrahlpumpe antreibt.

Der Teil zurückgeführten Retentats kann beispielsweise durch die Förderleistung der Gasstrahlpumpe oder den Durchmesser der Retentatleitung 6 und der Rückführleitung 7a vorbestimmt werden, es sind jedoch auch Proportionalventile im Bereich der Abzweigung der Rückführleitung 7a von der Retentatleitung 6 denkbar.

10

In der in Fig. 1 dargestellten Ausführungsform wird der zurückgeführte Teil des Retentats dabei unmittelbar vor das Membranmodul 5 in den wasserstoffhaltigen Reformatgasstrom eingeleitet. Der damit zu erzielende Effekt ist die Ausbildung einer Art "Membranreaktor", bei dem der in dem Retentat noch enthaltene Restwasserstoff zur Erhöhung der Wasserstoffkonzentration in dem Membranmodul 5 und damit zu einer Verbesserung der Abtrennung des Wasserstoffs in dem Membranmodul 5 genutzt wird. Bei dem hier dargestellten Aufbau lässt sich somit die Wasserstoffausbeute durch das Membranmodul 5 steigern.

In Fig. 2 ist ein Aufbau dargestellt, welcher über weite Strecken vergleichbar zu dem oben beschriebenen Aufbau ist. Lediglich die in Fig. 2 dargestellte Rückführleitung 7b führt nicht aus dem Bereich der Retentatleitung 6 unmittelbar vor das Membranmodul 5, sondern aus dem Bereich der Retentatleitung 6 unmittelbar vor den Reformer 3. Auch in diesem Fall kann die Zusammenführung 8 wieder als Gasstrahlpumpe ausgebildet sein, welche gemäß dem hier dargestellten Ausführungsbeispiel von dem Gemisch der dem Reformer 3 zuströmenden Edukte A, B, C angetrieben wird. Neben diesem Gemisch könnte die Gasstrahlpumpe selbstverständlich auch so ausgebildet sein, dass diese von nur einem der Edukte angetrieben werden würde.

35

Im Gegensatz zu der Rückführung der Retentats gemäß Fig. 1 liegt der Schwerpunkt der Rückführung bei der Ausgestaltung gemäß Fig. 2 darin, dass durch die Rückführungsleitung 7b das Retentat und das in ihm enthaltene Wasser in den Bereich des Reformers 3 zurückgeführt wird. Da dieses wasserdampfförmig vorliegt, kann die erforderliche Zugabe des Edukts Wasser bzw. Wasserdampf reduziert werden, so dass die erforderliche thermische Energie zum Verdampfen des eingesparten Wassers ebenfalls eingespart werden kann.

10

In Fig. 3 ist eine weitere Ausführungsform des Gaserzeugungssystems 1 dargestellt, wobei bei dieser Ausführungsform gemäß Fig. 3 die ein- oder mehrstufig ausgebildete Shifteinrichtung 4 nicht mehr optional, sondern zwingend erforderlich ist. Die Rückführung zumindest eines Teils des Retentats über die Rückführleitung 7c gemäß Fig. 3 erfolgt nämlich nun genau in diesem Bereich zwischen der Shifteinrichtung 4 und dem Reformer 3. Auch hier kann die Zusammenführung 8 wieder als Gasstrahlpumpe ausgebildet sein, welche von dem aus dem Reformer 3 zu der Shifteinrichtung 4 strömenden Reformatgasstrom angetrieben wird.

Der Vorteil bei einer derartigen Ausgestaltung des Gaserzeugungssystems 1 liegt nun darin, dass das Temperaturniveau von Membranmodul 5 und Shiftstufe 4 relativ ähnlich ist, so dass auf eine Erwärmung des rückgeführten Retentats weitgehend verzichtet werden kann bzw. diese automatisch aufgrund des Energieinhalts in dem Reformatgasstrom erfolgt. Damit wird nochmals Energie eingespart und außerdem der Reformatgasstrom durch das rückgeführte Retentat so weit abgekühlt, dass dieser in der ein- oder mehrstufigen Shifteinrichtung 4 bei den hierfür idealen Temperaturbedingungen umgesetzt werden kann.

Die in den drei oben beschriebenen Figuren dargestellten Ausführungsformen der Retentat-Rückführung in dem Gaserzeugungssystem 1 sind dabei sowohl einzeln, wie es hier prinzipmäßig dargestellt ist, verwendbar, als auch in jeder denkbaren Kom-

5 bination untereinander. So kann beispielsweise ein Teil des Retentats in den Bereich des Membranmoduls 5, ein weiterer Teil in den Bereich des Reformers 3 und gegebenenfalls ein dritter Anteil in den Bereich der Shifteinrichtung 4 zurückgeführt werden. Ein verbleibender Anteil kann dann immer noch über die Retentatleitung 6 einem weiteren Zweck, wie beispielsweise einer katalytischen Verbrennung zur Verdampfung des extern noch benötigten Wassers, zugeführt werden.

DaimlerChrysler AG

Senft

02.04.2003

Patentansprüche

5

1. Gaserzeugungssystem mit wenigstens einem Reformer zum Erzeugen eines wasserstoffhaltigen Reformatgasstroms aus Einsatzstoffen, von welchen zumindest einer Kohlenstoff und Wasserstoff aufweist, sowie mit wenigstens einer Einrichtung zur selektiven Abtrennung von Wasserstoff aus dem wasserstoffhaltigen Reformat, dadurch gekennzeichnet, dass eine Rückführung (7a,7b,7c) vorgesehen ist, durch welche zumindest ein Teil des nach der Einrichtung (5) zur selektiven Abtrennung von Wasserstoff verbleibenden Restgases in den Bereich vor die Einrichtung (5) zur selektiven Abtrennung von Wasserstoff zurückgeführt ist.

20

2. Gaserzeugungssystem nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass zumindest ein Teil des Restgases unmittelbar vor die Einrichtung (5) zur selektiven Abtrennung von Wasserstoff zurückgeführt ist.

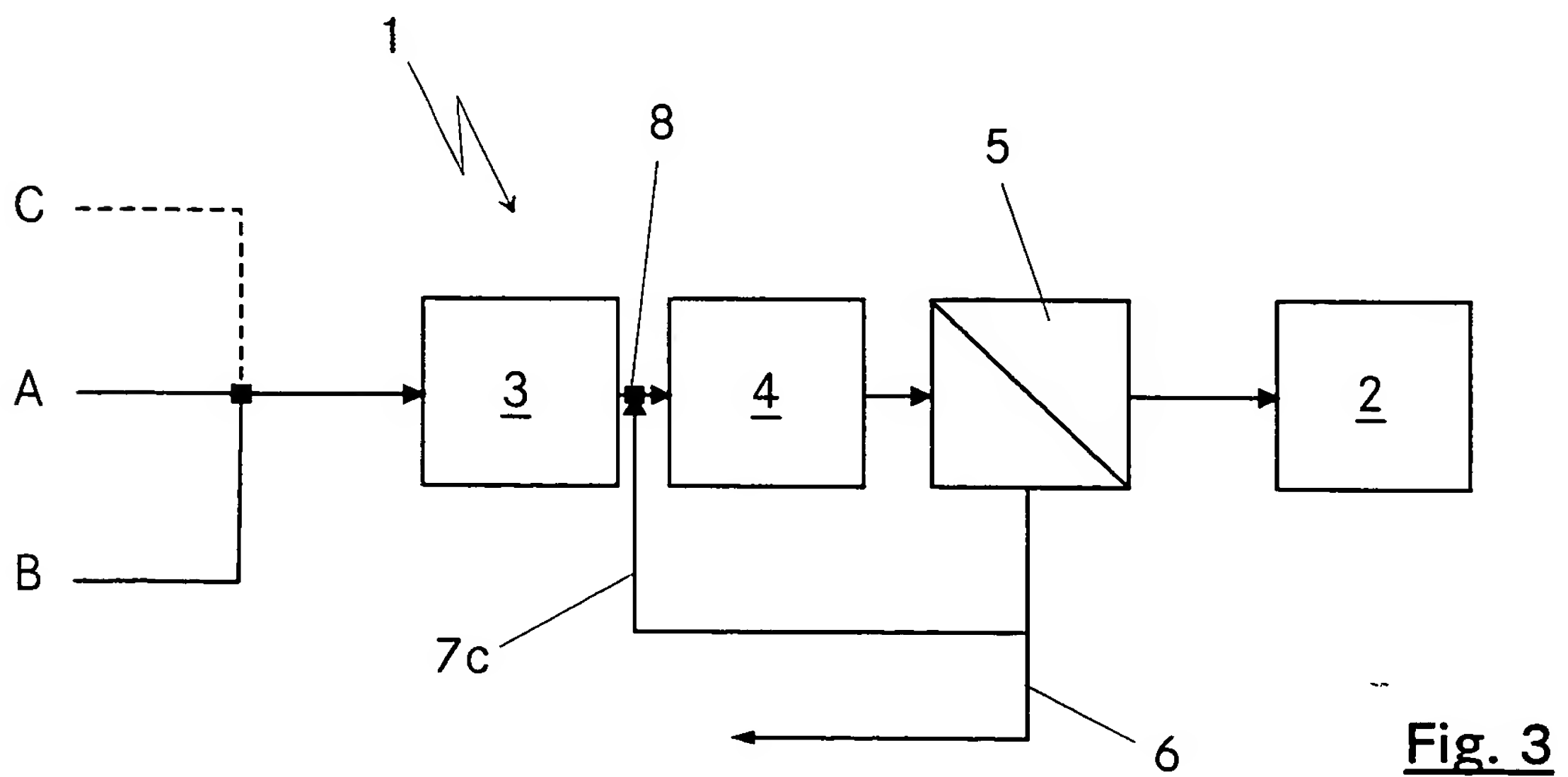
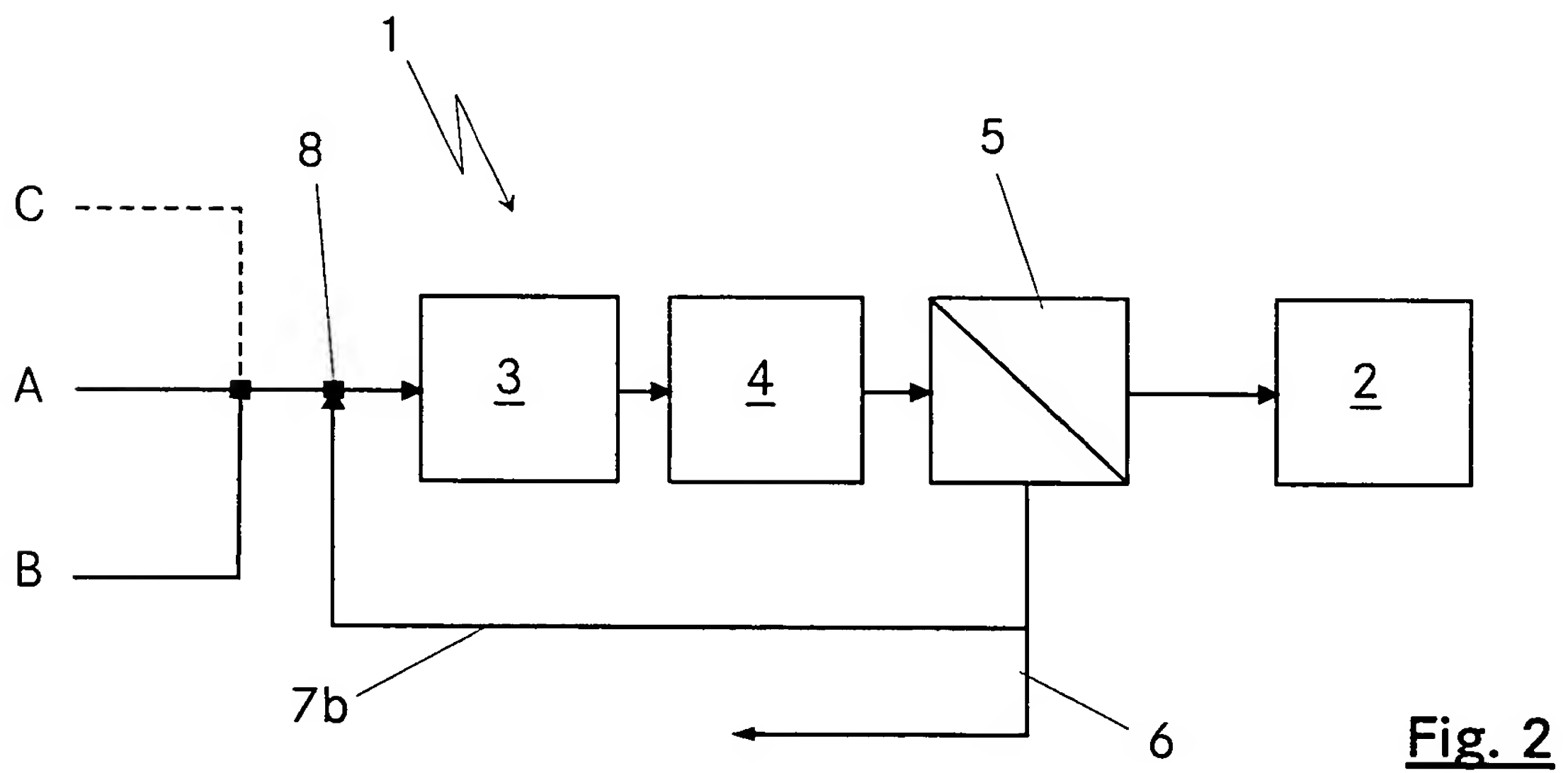
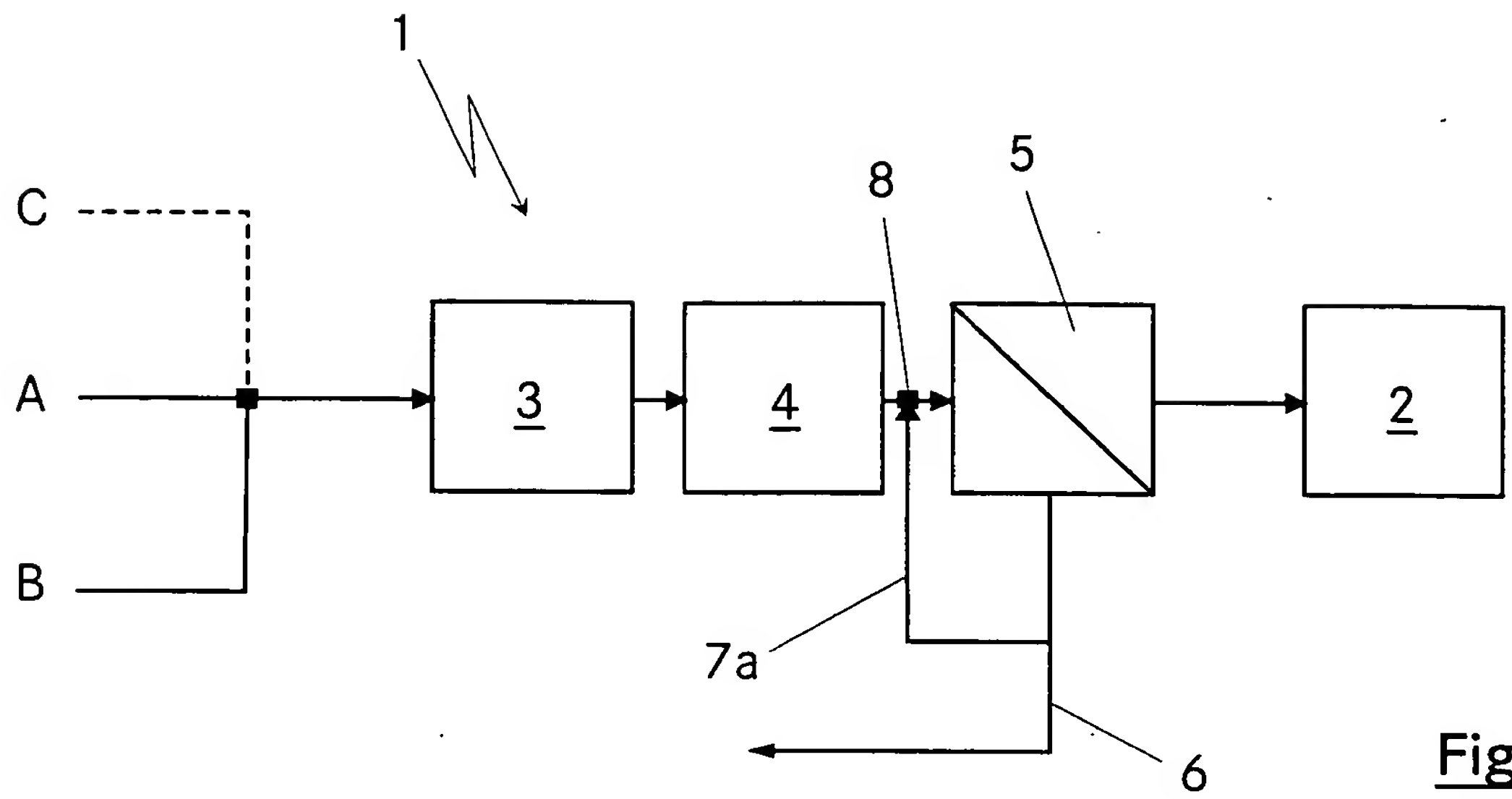
25

3. Gaserzeugungssystem nach Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, dass zumindest ein Teil des Restgases durch die Rückführung (7b) in den Bereich der in den Reformer (3) eintretenden Einsatzstoffe (A,B,C) zurückgeführt ist.

30

4. Gaserzeugungssystem nach Anspruch 1, 2 oder 3,
d a d u r c h g e k e n n z e i c h n e t ,
dass zumindest ein Teil des Restgases durch die Rückfüh-
rung (7c) in einen Bereich zwischen dem Reformer (3) und
5 einer Einrichtung (4) zur Anreicherung des wasserstoff-
haltigen Reformatgasstroms mit Wasserstoff, welche zwi-
schen dem Reformer (3) und der Einrichtung (5) zur selek-
tiven Abtrennung von Wasserstoff angeordnet ist, zurück-
geführt ist.
- 10 5. Gaserzeugungssystem nach einem der Ansprüche 1 bis 4,
d a d u r c h g e k e n n z e i c h n e t ,
dass die Einrichtung (5) zur selektiven Abtrennung für
Wasserstoff selektiv durchlässige Membranen aufweist.
- 15 6. Gaserzeugungssystem nach einem der Ansprüche 1 bis 5,
d a d u r c h g e k e n n z e i c h n e t ,
dass die Rückführung (7a,7b,7c) eine Fördereinrichtung
für das zurückgeführte Restgas aufweist.
- 20 7. Gaserzeugungssystem nach einem der Ansprüche 1 bis 6,
d a d u r c h g e k e n n z e i c h n e t ,
dass die Fördereinrichtung als Gasstrahlpumpe ausgebildet
ist, welche von dem Volumenstrom zumindest eines der
25 Einsatzstoffe (A,B,C) oder dem wasserstoffhaltigen Refor-
matgasstrom angetrieben ist.
8. Gaserzeugungssystem nach einem der Ansprüche 1 bis 7,
d a d u r c h g e k e n n z e i c h n e t ,
30 dass der Reformer (3) als Dampfreformer ausgebildet ist.
9. Gaserzeugungssystem nach Anspruch 1 bis 7,
d a d u r c h g e k e n n z e i c h n e t ,
dass der Reformer (3) als autothermer Reformer ausgebil-
35 det ist

10. Verwendung eines Gaserzeugungssystems nach einem der vorhergegangenen Ansprüche zur Erzeugung eines wasserstoffhaltigen Gases aus flüssigen Kohlenwasserstoffen und/oder Kohlenwasserstoffderivaten, insbesondere Benzin oder Diesel, für das Betreiben einer Brennstoffzelle (2).
- 5
11. Verwendung nach Anspruch 10,
dadurch gekennzeichnet,
dass es sich um die Brennstoffzelle (2) eines Antriebssystems für ein Transportmittel, zu Wasser, zu Lande oder in der Luft, handelt.
- 10
12. Verwendung nach Anspruch 10,
dadurch gekennzeichnet,
dass es sich um die Brennstoffzelle (2) eines Hilfsenergieerzeugers handelt.
- 15
13. Verwendung nach Anspruch 12,
dadurch gekennzeichnet,
dass der Hilfsenergieerzeugers in einem Transportmittel, zu Wasser, zu Lande oder in der Luft, insbesondere in einem von einem Verbrennungsmotor angetriebenen Transportmittel, eingesetzt wird.
- 20



DaimlerChrysler AG

Senft

02.04.2003

Zusammenfassung

- 5 Ein Gaserzeugungssystem weist wenigstens einen Reformer zum Erzeugen eines wasserstoffhaltigen Reformatgasstroms aus Einsatzstoffen, von welchen zumindest einer Kohlenstoff und Wasserstoff aufweist, sowie wenigstens eine Einrichtung zur selektiven Abtrennung von Wasserstoff aus dem wasserstoffhaltigen Reformatgas, auf.
- 10 Erfindungsgemäß ist eine Rückführung vorgesehen ist, durch welche zumindest ein Teil des nach der Einrichtung zur selektiven Abtrennung von Wasserstoff verbleibenden Restgases in den Bereich vor die Einrichtung zur selektiven Abtrennung von
- 15 Wasserstoff zurückgeführt wird.
- Das Gaserzeugungssystem findet seine bevorzugte Verwendung bei der Erzeugung eines wasserstoffhaltigen Gases aus flüssigen Kohlenwasserstoffen, insbesondere Benzin oder Diesel, für das Betreiben einer Brennstoffzelle. Die Brennstoffzelle kann
- 20 Teil einer Antreibseinrichtung oder eines Hilfsenergieerzeugers, insbesondere in einem Kraftfahrzeug sein.